

## ИСПОЛЬЗОВАНИЕ СЛАБОГО МАГНИТНОГО ПОЛЯ В МЕССБАУЭРОВСКИХ ИССЛЕДОВАНИЯХ СПЛАВА 5БДСР, МОДИФИЦИРОВАННОГО МОЩНЫМ ИОННЫМ ПУЧКОМ

Р.А. Назипов<sup>1)</sup>, Р.И. Баталов<sup>2)</sup>, Р.М. Баязитов<sup>2)</sup>, Г.А. Новиков<sup>2)</sup>, В.А. Шустов<sup>2)</sup>, Е.Н. Дулов<sup>3)</sup>

<sup>1)</sup>Казанский национальный исследовательский технологический университет,  
ул. К. Маркса 68, 420015 Казань, Россия, [rusnazipov@kstu.ru](mailto:rusnazipov@kstu.ru)

<sup>2)</sup>Казанский физико-технический институт им. Е.К. Завойского ФИЦ КазНЦ РАН,  
Сибирский тракт 10/7, 420029 Казань, Россия,  
[batalov@kfti.knc.ru](mailto:batalov@kfti.knc.ru), [bayaz@kfti.knc.ru](mailto:bayaz@kfti.knc.ru), [h.novikoff@gmail.com](mailto:h.novikoff@gmail.com), [shustov@kfti.knc.ru](mailto:shustov@kfti.knc.ru)

<sup>3)</sup>Казанский (Приволжский) федеральный университет,  
ул. Кремлевская 18, 420008 Казань, Россия, [fe57@rambler.ru](mailto:fe57@rambler.ru)

Проведены мессбауэровские исследования фольги аморфного сплава 5БДСР, модифицированной мощным ионным пучком длительностью около 100 наносекунд с различным количеством импульсов. С целью разделения влияния на форму мессбауэровских спектров, которое оказывают изменение микроструктуры и магнитной текстуры, при мессбауэровских измерениях было использовано наложенное на образцы внешнее магнитное поле напряженностью около 2400 Э. Это позволило получить спектры с одинаковой магнитной текстурой и полагать, что изменение формы распределений сверхтонких магнитных полей связано с изменением микроструктуры сплава в результате облучения.

**Ключевые слова:** аморфные металлические сплавы; интенсивные импульсные ионные пучки; мессбауэровская спектроскопия; локально неоднородная структура; плавление; кристаллизация.

## USE OF A WEAK MAGNETIC FIELD IN MÖSSBAUER STUDIES OF THE 5NbCuSiB ALLOY MODIFIED BY INTENSE ION BEAM

R.A. Nazipov<sup>1)</sup>, R.I. Batalov<sup>2)</sup>, R.M. Bayazitov<sup>2)</sup>, H.A. Novikov<sup>2)</sup>, V.A. Shustov<sup>2)</sup>, E.N. Dulov<sup>3)</sup>

<sup>1)</sup>Kazan National Research Technological University,  
68 Karl Marx Str., 420015 Kazan, Russia, [rusnazipov@kstu.ru](mailto:rusnazipov@kstu.ru)

<sup>2)</sup>Kazan E.K. Zavoisky Physical-Technical Institute, KazSC, RAS, 10/7 Sibirsky tract, 420029 Kazan,  
Russia, [batalov@kfti.knc.ru](mailto:batalov@kfti.knc.ru), [bayaz@kfti.knc.ru](mailto:bayaz@kfti.knc.ru), [h.novikoff@gmail.com](mailto:h.novikoff@gmail.com), [shustov@kfti.knc.ru](mailto:shustov@kfti.knc.ru),

<sup>3)</sup>Kazan Federal University, 18 Kremlyovskaya Str., 420008 Kazan, Russia, [fe57@rambler.ru](mailto:fe57@rambler.ru)

Mössbauer studies of a foil of an amorphous 5NbCuSiB alloy modified by a intense ion beam with a duration of about 100 nanoseconds with different numbers of pulses were carried out. In order to separate the influence on the shape of the Mössbauer spectra, which have from a change in the microstructure and magnetic texture, in Mössbauer measurements an external magnetic field of about 2400 Oe superimposed on the samples was used. This made it possible to obtain spectra with the same magnetic texture and to assume that the change in the shape of the distributions of the hyperfine magnetic fields is associated with the change in the microstructure of the alloy as a result of irradiation.

The distribution of hyperfine fields  $P(H_{\text{hf}})$ , reconstructed from the Mössbauer spectrum of the initial alloy, has the form of a bimodal distribution, with a large maximum in the region of hyperfine fields of about 120-320 kOe and with a small maximum, in the region of 90-140 kOe, the whose shape changes as a result of irradiation.

For samples measured in a magnetic field, a small peak on the distribution of  $P(H_{\text{hf}})$  in the region of smaller fields shows a relative increase in height and its sharpness tends to increase with increasing number of pulses. Consequently, under the assumption that the shock wave generated by the intense ion beam effect can diminish nanopores, similar as hydrostatic compression, such behavior can be associated only with an increase in the quantity of zones depleted in iron and simultaneously with the occupation of atoms in more ordered positions in these zones.

The magnitude of the average hyperfine magnetic field  $\langle H_{\text{hf}} \rangle$  for the Mössbauer spectra obtained from measurements in a magnetic field does not change within the limits of the measurement error. On the contrary, for the Mössbauer spectra measured without a field, the value of  $\langle H_{\text{hf}} \rangle$  increases with an increase in the number of pulses, which is associated with a change in the relative intensity of the Mössbauer lines, but rather than structural changes.

**Keywords:** amorphous metallic alloys; intense pulsed ion beams; Mössbauer spectroscopy; locally inhomogeneous structure; melting; crystallization.

### Введение

Известно, что исходные сплавы Finemet-типа в стандартных условиях находятся в метастабильном аморфном состоянии. Их нагрев выше 250-300°C приводит к необратимым изменениям микроструктуры сплава. Дальнейшее повышение температуры сопровождается кристаллизацией в твердом состоянии. При облучении фольг из аморфных сплавов мощными ионными пучками

(МИП) длительностью около 100 наносекунд они остаются рентгеноаморфными [1]. Чувствительность рентгеноструктурного анализа недостаточна при размерах кристаллитов меньших чем размеры зон Гинье-Престона (до ~ 5 нм). В этом случае мессбауэровская спектроскопия является более тонким инструментом исследования микроструктуры. Мессбауэровские параметры зависят в первую очередь от состояния

и позиции ближайших атомов окружающих резонансные ядра  $^{57}\text{Fe}$ . Для магнетиков важным параметром оказывается также и соотношение интенсивности линий зеемановского секстета, которое зависит от магнитной текстуры. При воздействии МИП на металлические фольги появляются механические напряжения, которые меняют магнитную анизотропию и магнитную текстуру. Относительные интенсивности линий, в свою очередь, могут влиять на форму распределения сверхтонких магнитных полей  $P(H_{\text{hf}})$  восстановленных из мессбауэровских спектров. Использование при мессбауэровских измерениях внешнего магнитного поля с напряженностью, достаточной для доведения образца до состояния магнитного насыщения [2], позволяет получить мессбауэровские спектры с одинаковыми относительными интенсивностями линий. Это дает возможность разделить совместное влияние на  $P(H_{\text{hf}})$  микроструктуры и магнитной текстуры.

В работе приводятся результаты восстановления распределений сверхтонких полей  $P(H_{\text{hf}})$  из мессбауэровских спектров аморфного сплава 5БДСР после обработки МИП, измеренных как при наложении слабого магнитного поля, так и без него. Дается интерпретация полученных результатов.

#### Материалы и методы исследования

Объектом модификации и исследования являлся аморфный сплав 5БДСР, с химическим составом  $\text{Fe}_{77}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13}\text{B}_6$ , произведенный в виде тонких лент методом спиннингования в ЦНИИ Чермет им. Бардина. Из лент были вырезаны три образца, с поперечными размерами от 5 до 15 мм, при толщине около 25 мкм, которые затем подвергались облучению ионами  $\text{C}^{n+}$  (80%) и  $\text{H}^+$  (20%) с матовой (неконтактной) стороны на импульсном ускорителе ионов «ТЕМП» с количеством импульсов 2, 5 и 10 при максимальной энергии ионов 300 кэВ и плотности потока энергии  $\sim 1.5 \text{ Дж/см}^2$ .

Подробное описание условий облучения, рентгеноструктурных и мессбауэровских исследований приведено в работе [1]. Здесь же мы приведем результаты вновь выполненных мессбауэровских измерений на спектрометре SM1101, в том числе в приложенном слабом внешнем магнитном поле, с напряженностью 2.4 кЭ. Методика и технические детали мессбауэровских измерений в «слабом» магнитном поле подробно описаны в работе [2].

Измерения проводились при комнатной температуре. Источником мессбауэровских гамма-квантов служил  $^{57}\text{Co}(\text{Rh})$ , с активностью около 10-15 мКи. Калибровка скоростной шкалы спектрометра проводилась по  $\alpha\text{-Fe}$ . Для математической обработки мессбауэровских спектров использовались компьютерные программы MossFit (СПбГУ, ИАНП РАН), Univem MS (ЮФУ) и CMSpectra.

#### Результаты и их обсуждение

Образцы сплава 5БДСР после облучения на импульсном ускорителе ионов «ТЕМП» остаются

рентгеноаморфными. На их рентгеновских дифрактограммах присутствует только широкое рентгеноаморфное гало, параметры которого мало отличаются от исходного образца. Мессбауэровские спектры имеют вид асимметричного зеемановского секстета с широкими линиями (рис. 1), характерный для неупорядоченных магнитных сплавов железа.

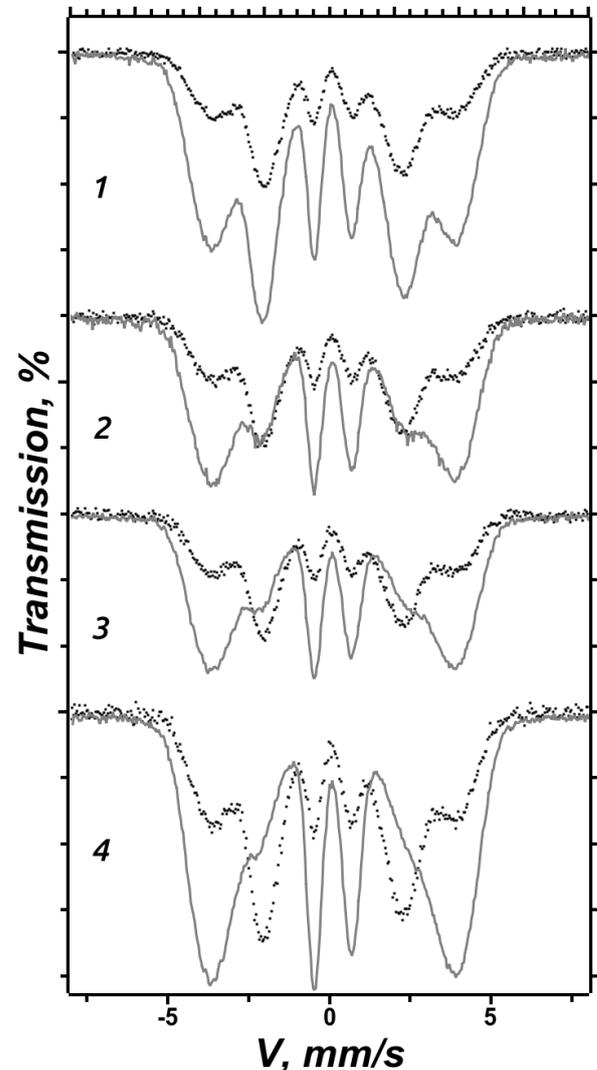


Рис. 1. Мессбауэровские спектры фольги из исходного сплава (1) и облученных фольг с разным количеством импульсов: 2 (2), 5 (3) и 10 (4); сплошная линия серого цвета — измерения без магнитного поля, черные точки — измерения в магнитном поле 2.4 кЭ

Fig. 1. Mössbauer spectra of foil from the initial alloy (1) and irradiated foils with different number of pulses: 2 (2), 5 (3) and 10 (4); solid gray line – measurements without a magnetic field, black dots – measurements in a magnetic field 2.4 kOe

У облученных образцов имеется явная тенденция к перпендикулярной магнитной анизотропии, на что указывает сильное уменьшение интенсивности 2-й и 5-й линий секстета ( $A_{2,5}$ ). Это связано с возникновением внутренних напряжений и их влияния на изменение магнитной текстуры. Действие внутренних напряжений видно непосредственно: ленты деформируются (скручиваются) вокруг оси,

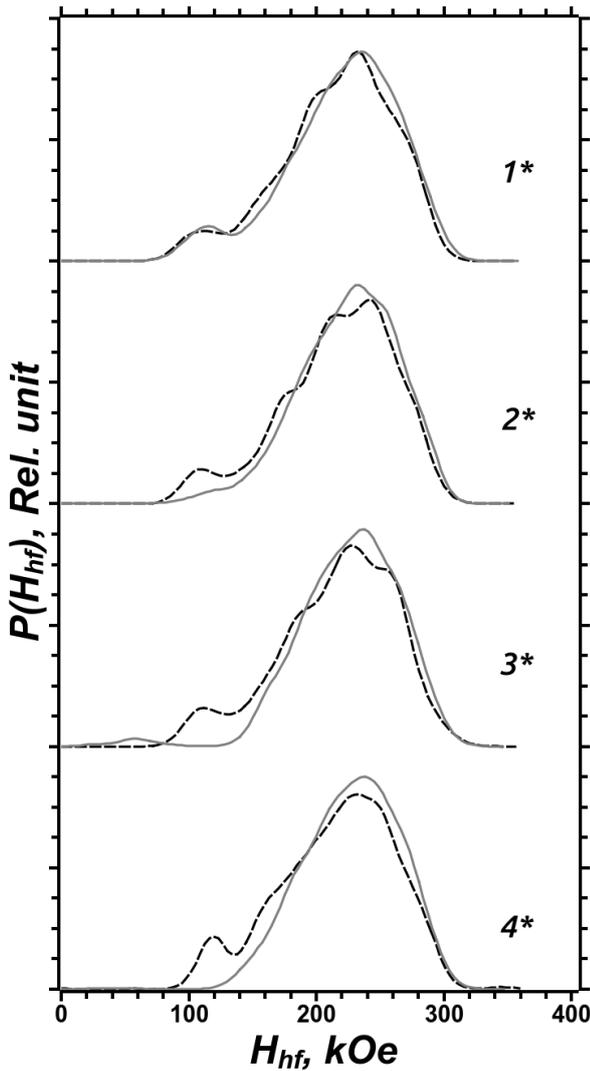


Рис. 2. Распределения по сверхтонкому полю  $P(H_{hf})$ , восстановленные из мессбауэровских спектров фольги из исходного сплава (1\*) и облученных фольг с разным количеством импульсов: 2 (2\*), 5 (3\*) и 10 (4\*); сплошная линия серого цвета — измерения без магнитного поля, черная пунктирная линия — измерения в магнитном поле 2.4 кЭ

Fig. 2. Distributions hyperfine field  $P(H_{hf})$ , reconstructed from the Mössbauer spectra of the foil the initial alloy (1\*) and irradiated foils with different number of pulses: 2 (2\*), 5 (3\*) and 10 (4\*); solid gray line — measurements without a magnetic field, black dashed line — measurements in a magnetic field 2.4 kOe

перпендикулярной направлению литья ленты в направлении пучка ионов. Ленты сохраняют свою эластичность и способны упруго деформироваться без разрушения.

Распределение сверхтонких полей  $P(H_{hf})$ , восстановленное из мессбауэровского спектра исходного сплава, имеет вид бимодального распределения, с большим максимумом в области сверхтонких полей примерно 120-320 кЭ и с малым максимумом, в области 90-140 кЭ, форма которого меняется в результате облучения (рис. 2). Найденное при вычислении распределения  $P(H_{hf})$  отношение интенсивности второй-пятой линии к

первой-шестой в мессбауэровском спектре близко к  $\langle A_{2,5}/A_{1,6} \rangle \approx 0.8$ .

При облучении МИП соотношение  $A_{2,5}/A_{1,6}$  в мессбауэровских спектрах снижается до 0.2. При этом на восстановленных распределениях  $P(H_{hf})$  низкополевой малый максимум «расплывается», его интенсивность падает, а сам он может смещаться, либо осциллировать.

В работе [1], малый пик на распределении  $P(H_{hf})$  был отнесен к мессбауэровским атомам, находящимся в нанопорах, обнаруженных в экспериментах по малоугловому рассеянию рентгеновских лучей. Эти нанопоры «залечиваются» при сильном гидростатическом сжатии [3]. Возможно, что подобное действие на нанопоры способны оказывать и ударные волны, которые генерируются в металле при облучении МИП [4].

Также, имеется другое представление о природе малого пика, которого придерживаются многие исследователи, например [5], что малый пик на распределении  $P(H_{hf})$  можно связать с зонами, в которых атомы железа имеют в ближайшем окружении значительное количество немагнитных атомов.

Перед анализом обоих вариантов природы малого пика необходимо определить: 1) является ли малый пик в области малых полей реальным, а не артефактом математической обработки, природа которого не является отражением микроструктуры; 2) влияет ли на его форму изменение соотношений интенсивности линий мессбауэровского спектра.

На первый вопрос авторы [5] отвечают, что малый пик является реальным. Они провели восстановление распределения  $P(H_{hf})$  из мессбауэровского спектра Finemet с использованием разных условий восстановления и получили, что устойчивое появление малого пика в малых полях происходит при распределении сверхтонких полей совместно с корреляцией изомерного и квадрупольного сдвигов.

На второй вопрос отвечают настоящие мессбауэровские исследования фольг аморфного сплава 5БДСР, облученных МИП и измеренные в «слабом» магнитном поле.

Таблица 1. Значение нормированного хи-квадрат, средние значения отношения интенсивностей и сверхтонкого поля

Table 1. The value of the normalized chi-square, the average values of the ratio of the intensities and the hyperfine field

	Without magnetic field			In a magnetic field		
	$\chi^2$	$\langle A_{2,5}/A_{1,6} \rangle$	$\langle H_{hf} \rangle$ , kOe	$\chi^2$	$\langle A_{2,5}/A_{1,6} \rangle$	$\langle H_{hf} \rangle$ , kOe
initial	1.80	0.76	220	0.95	1.26	215
2 pulses	1.24	0.37	225	0.88	1.22	216
5 pulses	1.34	0.30	226	0.95	1.21	216
10 pulses	2.12	0.21	227	1.15	1.15	215

При наложении внешнего магнитного поля, с напряженностью достаточной для ориентации намагниченности вдоль плоскости ленты (перпендикулярно гамма-излучению) в мессбауэровских спектрах происходит установление соотношения интенсивности линий секстета, близкое к  $A_{1,6}:A_{2,5}:A_{3,4}=3:4:1$ . Из этих

мессбауэровских спектров были восстановлены распределения  $P(H_{\text{hf}})$ , получены значения усредненных мессбауэровских параметров, в том числе отношение линий  $\langle A_{2,5}/A_{1,6} \rangle \approx 1,2 \pm 1,3$  и среднее сверхтонкое поле  $\langle H_{\text{hf}} \rangle$ , величины которых приведены в табл. 1. Низкополевой малый пик на этих распределениях снова присутствует, а его форма меняется. Параметры малого пика были определены в программе Fituk, с использованием функции распределения Пирсона-7 и приведены в табл. 2. Из табл. 2 видно, что с ростом числа импульсов имеется тенденция к смещению этого пика в сторону больших полей. Для образца, облученного с наибольшим количеством импульсов ( $n=10$ ), он становится наиболее острым, а его полная ширина на половине высоты — наименьшей.

Таблица 2. Параметры малого пика на  $P(H_{\text{hf}})$  при его аппроксимации: положение, высота, площадь, ширина и острота

Table 2. Parameters of a small peak from  $P(H_{\text{hf}})$  approximated Pearson-VII

	Center, kOe	Height	Area	FWHM	Shape
initial	113	0.0052	0.25	45	2.62e+014
2 puls.	113	0.0058	0.31	40	2.59e+014
5 puls.	115	0.0065	0.33	40	3.81e+014
10 puls.	122	0.0086	0.16	33	5.38e+014

### Закключение

Проведены мессбауэровские исследования образцов аморфного сплава 5БДСР, облученных МИП с разным числом импульсов. Малый пик на распределении  $P(H_{\text{hf}})$  в области меньших полей показывает относительное увеличение высоты, и его острота имеет тенденцию к увеличению по мере увеличения количества импульсов. Следовательно, при допущении, что генерируемая при воздействии МИП ударная волна способна «залечивать» нанопоры, как и гидростатическое сжатие, такое поведение можно связать только с увеличением количества зон, обедненных железом и одновременно с занятием атомов более упорядоченных положений в этих зонах.

Величина среднего сверхтонкого магнитного поля  $\langle H_{\text{hf}} \rangle$  для мессбауэровских спектров, полученных при измерениях в магнитном поле, не меняется в пределах ошибки измерения. Напротив, для мессбауэровских спектров, измеренных без поля, величина  $\langle H_{\text{hf}} \rangle$  увеличивается с ростом количества импульсов, что связано с изменением относительной интенсивности мессбауэровских линий, а не структурными изменениями.

Исследования выполнены при финансовой поддержке РФФИ в рамках проекта № 19-03-00847.

### Библиографические ссылки

1. Назипов Р.А., Пятаев А.В., Игнат'ев А.А., Выжимов Ю.М., Баталов Р.И., Баязитов Р.М., Шустов В.А. Влияние мощного импульсного ионного пучка на аморфный сплав Fe77Cu1Nb3Si13B6: Мессбауэровские и рентгеноструктурные исследования. *Физика и химия обработки материалов*. 2015; (6):5-15.
2. Назипов Р.А., Выжимов Ю.М., Арсланов Э.А. влияние "слабого" магнитного поля на мессбауэровский спектр сплава 5БДСР. *Проблемы черной металлургии и материаловедения* 2018; (3):33-39.
3. Слуцкер А.И., Бетехтин В.И., Кадомцев А.Г., Толочко О.В., Амосова О.В. Зависимость магнитных свойств аморфного металлического сплава от его нанопористости. *Физика твердого тела* 2008; 50(2): 280-284.
4. Валяев А.Н., Погребняк А.Д., Лаврентьев В.И., Волков С.Н., Плотников С.В. Влияние градиента давления ударной волны в alpha-Fe, облученном мощным ионным пучком, на появление максимума микротвердости на больших глубинах. *Письма в журнал технической физики* 1998; 24(3): 47-53.
5. Borrego J.M., Conde A., Peña-Rodríguez V.A., Grenèche J.M. Fitting Procedure to Describe Mössbauer Spectra of FINEMET-type Nanocrystalline Alloys. *Hyperfine Interactions* 2000; 131(1-4): 67-82.

### References

1. Nazipov R.A., Pyataev A.V., Ignat'ev A.A., Vyzhimov Yu.M., Batalov R.I., Bayazitov R.M., Shustov V.A. Vliyaniye moshchnogo impul'snogo ionnogo puchka na amorfnyy splav Fe77Cu1Nb3Si13B6: Messbauerovskie i rentgenostrukturnye issledovaniya. [Effect of power pulsed ion beam irradiation on Fe77Cu1Nb3Si13B6 amorphous alloy: Mossbauer and X-ray diffraction studies]. *Fizika i khimiya obrabotki materialov* 2015; (6):5-15. (In Russian).
2. Nazipov R.A., Vyzhimov Yu.M., Arslanov E.A. vliyaniye "slabogo" magnitnogo polya na messbauerovskiy spektr splava 5BDSR. [The effect of a weak magnetic field on Mössbauer spectrum of the 5NbCuSiB alloy] *Problemy chernoy metallurgii i materialovedeniya* 2018; (3): 33-39. (In Russian).
3. Slutsker A.I., Betekhtin V.I., Kadomtsev A.G., Tolochko O.V., Amosova O.V. Zavisimost' magnitnykh svoystv amornogo metallicheskogo splava ot ego nanoporistosti. [Dependence of the magnetic properties of an amorphous metal alloy on its nanoporosity] *Fizika tverdogo tela* 2008; 50(2): 280-284. (In Russian).
4. Valyaev A.N., Pogrebnyak A.D., Lavrent'ev V.I., Volkov S.N., Plotnikov S.V. Vliyaniye gradienta davleniya udarnoy volny v alpha-Fe, obluchennom moshchnym ionnym puchkom, na poyavleniye maksimuma mikrotverdsti na bol'shikh glubinakh. [Influence of the shock wave pressure gradient in  $\alpha$ -Fe irradiated by a high-power ion beam on the occurrence of a microhardness maximum at large depth] *Pis'ma v zhurnal tekhnicheskoy fiziki* 1998; 24(3): 47-53. (In Russian).
5. Borrego J.M., Conde A., Peña-Rodríguez V.A., Grenèche J.M. Fitting Procedure to Describe Mössbauer Spectra of FINEMET-type Nanocrystalline Alloys. *Hyperfine Interactions* 2000; 131(1-4): 67-82.